

**THIS PAGE IS INSERTED BY OIPE SCANNING  
AND IS NOT PART OF THE OFFICIAL RECORD**

## **Best Available Images**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

**BLACK BORDERS**

**TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

**FADED TEXT**

**BLURRY OR ILLEGIBLE TEXT**

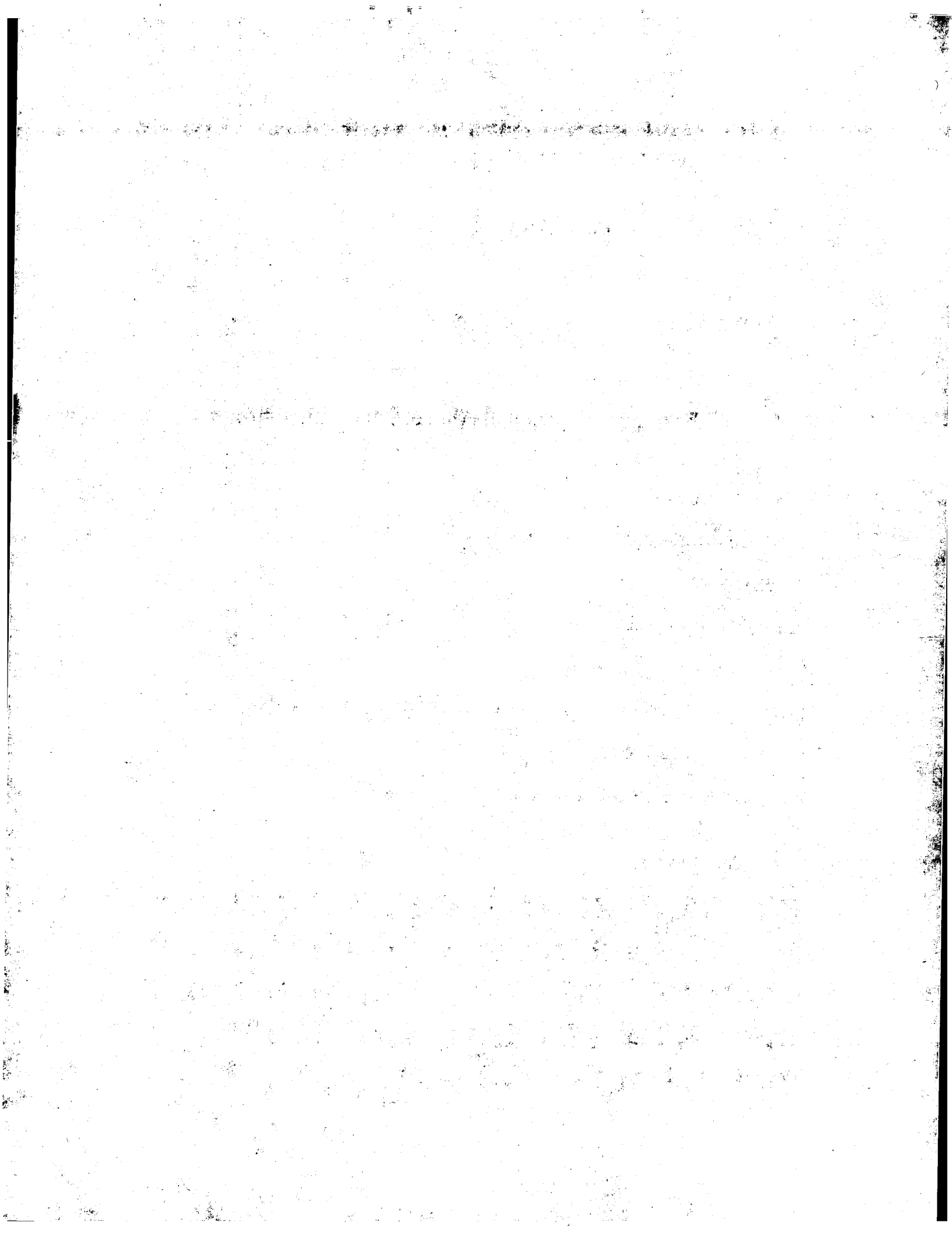
**SKEWED/SLANTED IMAGES**

**COLORLED PHOTOS HAVE BEEN RENDERED INTO BLACK AND WHITE**

**VERY DARK BLACK AND WHITE PHOTOS**

**UNDECIPHERABLE GRAY SCALE DOCUMENTS**

**IMAGES ARE THE BEST AVAILABLE  
COPY. AS RESCANNING *WILL NOT*  
CORRECT IMAGES, PLEASE DO NOT  
REPORT THE IMAGES TO THE  
PROBLEM IMAGE BOX.**



72038

72038 D/40 E16 H07 M14 (E13) **TEXACO DEV CORP** **TEXC 27.02.80**  
 27.02.80-US-125309 (24.09.81) C07c-85/12 C07c-87/20 C07d-295  
 T tra:alkyl-imino bis:alkyl amine cpds. prodn. - by catalytic reductive  
 dim risation of di:alkyl amino-alkyl nitrile and/or amine

E(7-H4, 10-B1E) H(7-G3) M(14-F1) N(2-C, 2-D, 3-D)

O 4 0

in the presence of an alcoholic solvent, NH<sub>3</sub> and a Ni/ or Co/Cu/Cr oxide catalyst.

**EXAMPLE**

A 50% MeOH soln. of (IIA1) was passed over a static bed catalyst, e.g. Ni-Cu-Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> or Co-Cu-Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the presence of excess H<sub>2</sub> but not NH<sub>3</sub> at 173 bar, 103-110°C and a LHSV of 1g/h-ml. The yield of dimer (IA; R is Me, n = 3) was 29% with the Ni catalyst at 103°C and 20% with the Co catalyst at 110°C. The main prod. was (IIB1). Distn. of the prod. obtd. using the Ni catalyst gave 95.2% pure (IA), b.pt. 199-123°C/20 mm Hg. The (IA) yield after distn. was 36.7%. (14pp016).

Prodn. of N,N,N',N'-tetraalkylimino-bis-alkylamines (I) of the formula (R<sub>2</sub>N(CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub>)<sub>2</sub>NH (in which R is 1-12 (1-4) esp. 1 C alkyl or forms a heterocyclic gp. (morpholine, pyrrolidine, piperidine or opt. N-substd. iperazine ring) with the adjacent N atom. n is 2 or 3) is carried out by heating a 3-dialkylaminoalkyl nitrile (IIA) of the formula R<sub>2</sub>N(CH<sub>2</sub>)mCN and/or a 3-dialkylaminoalkylamine (IIB) of the formula R<sub>2</sub>N(CH<sub>2</sub>)nNH<sub>2</sub> (in which m is 1 or 2) in the presence of excess H<sub>2</sub> and a hydrogenation-dehydrogenation catalyst at 75-250 (100-175) °C and 1-277 (34-173) bar.

**USE/ADVANTAGES**

(I) are obtd. simply, directly and in good yields. They are useful as corrosion inhibitors and as intermediates for functional monomers and lubricating oil dispersants.

**PREFERRED**

(II) is 3-dimethylaminopropionitrile (IIA1) and/or 3-dimethylaminopropylamine (IIB1). Reaction is carried out

DE3048832

1a

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

12 Offenlegungsschrift  
11 DE 30 48 832 A 1

51 Int. Cl. 3:  
C 07 C 87/20  
C 07 C 85/12  
C 07 C 85/24  
C 07 D 295/00

21 Aktenzeichen:  
22 Anmeldetag:  
43 Offenlegungstag:

P 30 48 832.5  
23. 12. 80  
24. 9. 81

DE 30 48 832 A 1

30 Unionspriorität: 32 33 31  
27.02.80 US 125309

71 Anmelder:  
Texaco Development Corp., 10650 White Plains, N.Y., US

74 Vertreter:  
Schupfner, G., Dipl.-Chem. Dr.phil.nat., Pat.-Anw., 2110  
Buchholz

72 Erfinder:  
Yeakey, Ernest Leon; Brennan, Michael Edward, 78757  
Austin, Tex., US; Templeton, James Herbert; Larkin, John  
Michael, 78759 Austin, Tex., US

54 »Verfahren zur Herstellung von N,N,N',N'-Tetraalkylimino-bis-alkylaminen«

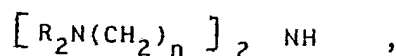
ORIGINAL INSPECTED

3048832

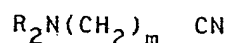
Texaco Development Corp.  
 T-045 80 DE S/KB  
 D 75,798-F (KRP)

# Patentansprüche

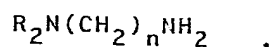
1. Verfahren zur Herstellung von N,N,N',N'-Tetraalkylimino-bis-alkylaminen der allgemeinen Formel:



worin R ein Alkylrest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen bedeutet oder mit dem benachbarten Stickstoffatom einen heterocyclischen Rest bildet und n 2 oder 3 ist d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß ein 3-Dialkylaminoalkylnitril der Formel:



oder ein 3-Dialkylaminoalkylamin der Formel:



worin R und n die oben angegebene Bedeutung besitzen und m 1 oder 2 ist, oder Gemische derselben in Anwesenheit von überschüssigem Wasserstoff und einem Hydrierungs-Dehydrierungskatalysator bei einer Temperatur von etwa 75°C bis 250°C und einem Druck von etwa 1 bis etwa 277 bar erhitzt werden.

2. Verfahren nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß eine Verbindung oder Gemische von Verbindungen der angegebenen Formel erhitzt werden, worin R eine niedere Alkylgruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, insbesondere Methyl, bedeutet.

....

130039/0995

ORIGINAL INSPECTED

3. Verfahren nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n -  
z e i c h n e t , daß eine Verbindung oder Gemische von  
Verbindungen der angegebenen Formeln erhitzt werden,  
worin R mit dem benachbarten Stickstoffatom den  
Morpholin-, Pyrrolidin-, Piperidin-, Piperazin- oder  
den N-substituierten Piperazinring bedeutet.
4. Verfahren nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n -  
z e i c h n e t , daß 3-Dimethylaminopropionitril  
und/oder 3-Dimethylaminopropylamin erhitzt werden.
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß in  
Gegenwart eines alkoholischen Lösungsmittels erhitzt  
wird.
6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche ,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß in  
Gegenwart von Ammoniak umgesetzt wird.
7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß ein  
Nickel/ oder Kobalt/Kupfer/Chromoxid-Katalysator  
eingesetzt wird.
8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß bei  
einer Temperatur von etwa 100°C bis etwa 175°C erhitzt  
wird.
9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß bei  
einem Druck von etwa 34 bar bis etwa 173 bar erhitzt wird.

3048832

-3-

DR. GERHARD SCHUPFNER  
PATENTANWALT  
European Patent Attorney

Karlstr. 5  
D 2110 Buchholz in der Nordheide  
Telefon: Büro (04181) 4457  
Telefon: Privat (04187) 6345  
Telex: 02189330  
Telegramm: Telepatent

T-045 80 DE  
D 75,798-F (KRP)

9. Dezember 1980

TEXACO DEVELOPMENT CORPORATION  
2000 WESTCHESTER AVENUE  
WHITE PLAINS, N. Y. 10650  
U. S. A.

---

Verfahren zur Herstellung von  
N,N,N',N'-Tetraalkylimino-bis-alkylaminen

---

130039/0995



Verfahren zur Herstellung von N,N,N',N'-Tetraalkyl-  
imino-bis-alkylaminen

Die vorliegende Erfindung betrifft Verfahren zur Herstellung von N,N,N',N'-Tetraalkylimino-bis-alkylaminen, insbesondere die Herstellung dieser Amine durch reduktive Dimerisierung von 3-Dialkylaminoalkylnitril und/oder 3-Dialkylaminoalkylamin durch Erhitzen derselben in Gegenwart eines Hydrierungs-Dehydrierungskatalysators und eines Überschusses an Wasserstoff.

In US-PS 4 101 466 und US-PS 4 143 071 wird die Herstellung von Tetraalkylimino-bis-propylaminen als Nebenreaktion bei der Herstellung von Dialkylaminopropylamin beschrieben. Das in diesen Patenten beschriebene Herstellungsverfahren ergibt die Tetraalkylimino-bis-propylamine in relativ geringen Ausbeuten und die zur Gewinnung dieser Bis-amine erforderlichen Destillationsverfahren sind mühsam und zeitraubend. Es ist Aufgabe der vorliegenden Erfindung, ein einfaches, direktes und gute Ausbeuten lieferndes Verfahren zur Herstellung dieser Bis-amine bereitzustellen, damit sie leicht als Korrosionsinhibitoren und als Zwischenprodukte für funktionelle Monomere und Schmieröl-Dispergentien eingesetzt werden können. Die Bis-amine der vorliegenden Erfindung können ebenfalls zur Herstellung der in den US-Patentschriften 4 101 466 und 4 143 071 beschriebenen Polyurethankatalysatoren verwendet werden.

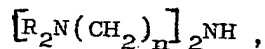
In US-PS 4 080 338 wird ein weiteres Verfahren zur Herstellung von Bis-aminen beschrieben, das mit Cyanoverbindungen und einem Katalysator in Gegenwart von Wasserstoff und zugeführter Wärme arbeitet. Diese Patentschrift beschreibt die Herstellung von

-4-5-

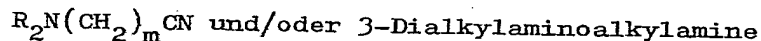
Bis-picolylamin mit einem vorbehandelten Palladium/Kohle-katalysator. BE-PS 860 740 beschreibt weiterhin die Herstellung von Dipropylamin durch Hydrierung von Acrylnitril.

Ein bedeutender Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens gegenüber Verfahren nach dem Stand der Technik ist die direkte Herstellung von Tetramethylimino-bis-propylaminen durch Erhitzen über Nichtedelmetall-Katalysatoren.

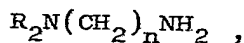
Es wurde ein neues Verfahren zur Herstellung von Tetraalkylimino-bis-alkylaminen der Formel



worin R ein Alkylrest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, oder mit dem benachbarten Stickstoffatom heterocyclisch verbunden ist, und n 2 oder 3 ist, gefunden, in dem 3-Dialkylaminoalkylnitrile der Formel



der Formel



worin R und n die obengenannte Bedeutung haben und m 1 oder 2 ist, in Gegenwart von überschüssigem Wasserstoff und Hydrierungs-Dehydrierungskatalysatoren bei etwa Atmosphärendruck bis etwa 277 bar auf etwa 75 bis 250°C erhitzt werden.

Eine Vielzahl von Ausgangsmaterialien wie 3-Dialkylaminoalkylnitrile, 3-Dialkylaminoalkylamine oder eine Kombination derselben kann zur Herstellung von Tetraalkylamino-bis-alkylaminen verwendet werden.

-7-6-

Die eingesetzten 3-Dialkylaminoalkylnitrile sollten die Formel  $R_2N(CH_2)_mCN$  haben, worin R ein Alkylrest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder mit dem benachbarten Stickstoffatom heterocyclisch verbunden ist und m 1 oder 2 ist. Das 3-Dialkylaminoalkylamin sollte die Formel  $R_2N(CH_2)_nNH_2$  haben, worin R die obengenannte Bedeutung hat und n 2 oder 3 ist. Werden Reaktanten mit den obengenannten Formeln eingesetzt, so erhält man durch Umsetzung gemäß der vorliegenden Erfindung Tetraalkylimino-bis-alkylamine der Formel  $[R_2N(CH_2)_n]_2NH$ , worin R und n die obengenannten Bedeutungen haben. Wenn R mit dem benachbarten Stickstoffatom einen heterocyclischen Ring bildet, so kann der Ring z.B. Morpholin, Pyrrolidin, Piperidin, Piperazin oder ein N-substituiertes Piperazin wie N-Methylpiperazin sein. Ein Beispiel für eine spezifische heterocyclische Verbindung ist N-3-Aminopropylmorpholin.

Ein bestimmtes Bis-amin, Tetramethylimino-bis-propylamin, wird aus 3-Dimethylaminopropylnitril und/oder 3-Dimethylaminopropylamin hergestellt. Die Beispiele zeigen die Herstellung dieses Bis-amins aus den genannten Reaktanten unter einer Vielzahl von Bedingungen.

Soweit gewünscht oder zur Erleichterung der Umsetzung notwendig kann auch ein Lösungsmittel eingesetzt werden. Alkohole, besonders die niedrigen Alkohole wie Methanol, Äthanol, Isopropanol und t-Butanol sind für den Einsatz besonders geeignet. In einigen Beispielen wurde Methanol eingesetzt; wie jedoch aus den Beispielen ersichtlich ist, arbeitet das erfindungsgemäße Verfahren am besten ohne den Einsatz von Lösungsmitteln. Es mag jedoch einige Dialkylaminoalkylnitrile oder Dialkylaminoalkylamine geben, die durch den Einsatz von Lösungsmitteln für die vorliegende Erfindung geeignet wären.

Wird ein Dialkylaminoalkylnitril bei dieser Reaktion eingesetzt, kann es wünschenswert sein, auch Ammoniak zuzugeben.

...

- 7 -

Es wird erwartet, daß Fachleute in der Lage sein werden, die Zugabe von Ammoniak so zu steuern, daß das Tetraalkylimino-bis-alkylamin und das als Nebenprodukt entstehende Dialkyl-aminoalkylamin im gewünschten Verhältnis gebildet werden. Um die Wirksamkeit der Ammoniakzugabe zu bestimmen, wurde in einigen nachfolgenden Beispielen, in denen 3-Dimethylamino-propionitril als Reaktant eingesetzt wird, den Ausgangsmaterialien Ammoniak zugesetzt. Bei der Durchführung der Reaktion der vorliegenden Erfindung unter den in Tabelle I aufgeführten Bedingungen wird bevorzugt kein Ammoniak eingesetzt, um eine maximale Ausbeute an Tetramethylimino-bis-propylamin zu erreichen.

Zur Durchführung der Reaktion wird das Ausgangsmaterial einfach in Gegenwart von überschüssigem Wasserstoff über einem Hydrierungs-Dehydrierungskatalysator erhitzt. Der bevorzugte Temperaturbereich liegt bei etwa 75 bis etwa 250°C. Aus den folgenden Beispielen ist ersichtlich, daß das Herstellungsverfahren in dem besonders bevorzugten Temperaturbereich von etwa 100 bis etwa 175°C am besten abläuft. Bevorzugt wird ein Druckbereich von etwa Atmosphärendruck bis etwa 277 bar angewendet. Beim Vergleich der Daten aus den beiden Tabellen wird ersichtlich, daß bei Durchführung der Reaktion bei Atmosphärendruck zwar Tetramethylimino-bis-propylamin gebildet wird, daß aber bei Anwendung des besonders bevorzugten Druckbereichs von etwa 34 bis etwa 173 bar die Ausbeute des gewünschten Produkts erheblich ansteigt.

Bei diesem Verfahren können viele Hydrierungs-Dehydrierungskatalysatoren eingesetzt werden. Metalle mit katalytischer Aktivität können im Umfange der vorliegenden Erfindung verwendet werden. So sind z.B. die Metalle der VIII. Hauptgruppe wie Palladium, Platin, Rhodium und Ruthenium geeignet. Andere Metalle wie Zink, Kupfer, Chrom und Mangan erscheinen ebenfalls für diese Reaktion geeignet. Bevorzugt werden

...

die in US-PS 3 152 998 beschriebenen Katalysatoren verwendet. Zwei Katalysatoren aus diesem Patent wurden in den Versuchen der vorliegenden Erfindung eingesetzt. Diese Katalysatoren sind ein Nickel/Kupfer/Chromoxid-Katalysator und ein Kobalt/Kupfer/Chromoxid-Katalysator. Ein Vorteil der Reaktion der vorliegenden Erfindung ist das Erreichen zufriedenstellender Ausbeuten mittels der bevorzugten Nickel- und Kobaltkatalysatoren, so daß ein Einsatz von Edelmetallkatalysatoren nicht nötig ist.

Die nachfolgend beschriebenen Beispiele erläutern die Herstellung von Tetramethylimino-bis-propylamin durch den Einsatz verschiedener Kombinationen von 3-Dimethylaminopropionitril, 3-Dimethylaminopropylamin, einem methanolischen Lösungsmittel und Ammoniak. Die Versuche wurden bei verschiedenen Temperaturen und Drücken durchgeführt, um die besten Bedingungen für die höchsten Ausbeuten zu ermitteln. Aus den Beispielen ist ersichtlich, daß das erfindungsgemäße Verfahren eine große Flexibilität der Ausgangsmaterialien erlaubt und gleichzeitig bei hohen Ausbeuten nur einen niedrigen Anteil an Nebenprodukten liefert. Aus den Beispielen ist weiterhin ersichtlich, daß dieses Verfahren sowohl für kontinuierlichen als auch für chargenweisen Betrieb geeignet ist.

#### Beispiel 1

Eine 50%ige methanolische Lösung von 3-Dimethylaminopropionitril (DMAPN),  $(\text{CH}_3)_2\text{N}(\text{CH}_2)_2\text{CN}$ , wurde in Gegenwart von überschüssigem Wasserstoff, jedoch ohne Ammoniak, unter einem Druck von 173 bar, bei einer Temperatur von  $103-110^\circ\text{C}$  und mit einer Zugaberate von 1 g flüssigem Ausgangsmaterial/h/ml Katalysator über einen Festbettkatalysator wie  $\text{Ni-Cu-Cr}_2\text{O}_3$  oder  $\text{Co-Cu-Cr}_2\text{O}_3$  geleitet. Es wurde eine im wesentlichen vollständige

...

dige Umsetzung des Nitrils erreicht, die Ausbeute an dimerem Tetramethylimino-bis-propylamin ( $T_4MIBPA$ ),  $[(CH_3)_2N(CH_2)_3]_2NH$ , betrug geschätzt nach Gaschromatographie bei dem Nickelkatalysator bei  $103^\circ C$  29 % und bei dem Kobaltkatalysator bei  $110^\circ C$  20 %. Das Hauptprodukt in diesen Versuchen war 3-Dimethylaminopropylamin (DMAPA),  $(CH_3)_2N(CH_2)_3NH_2$ ; Nebenprodukte waren N,N-Dimethyl-N'-propyl-1,3-propandiamin (DMPPDA),  $(CH_3)_2N(CH_2)_3NH(CH_2)_2CH_3$ , (Hydrolyseprodukt) und Hexamethylnitrilo-tris-propylamin ( $H_6MNTPA$ ),  $[(CH_3)_2N(CH_2)_3]_3N$ . Nach Destillation des Produkts aus dem Versuch mit dem Nickelkatalysator wurde ein 95,2% reines  $T_4MIBPA$ , mit einem Siedepunkt von  $199-123^\circ C/20$  mm Hg erhalten, dessen Struktur durch ein Infrarotspektrum bestätigt wurde. Die Ausbeute an  $T_4MIBPA$  nach der Destillation betrug 36,7 %.

In Tabelle I sind weitere Beispiele mit DMAPN/MeOH, DMAPN/DMAPA und DMAPA als Ausgangsmaterialien mit wahlweiser Ammoniakzugabe dargestellt.

...

Tabelle I

Herstellung von Tetranethylimino-bis-propylamin

Alle Versuche wurden kontinuierlich in einem röhrenförmigen 1,2 l-Reaktor bei 173 bar durchgeführt. Die Zugaberate betrug 1 g flüssiges Ausgangsmaterial/h/ml Katalysator.

Bei- spiel	Katalysator	Ausgangsmaterial (Gew.%)			Molverhältnis NH <sub>3</sub> /			% Umsetzung			% Ausbeute		
		DMAPN	MeOH	NH <sub>3</sub>	DMAPA	DMAPN	DMAPA	DMAPN	DMAPA	DMPPDA	T <sub>4</sub> NLBPA	H <sub>6</sub> NNTPA	H <sub>6</sub> NNTPA
2	Ni-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 98,20°C	46,36	46,36	7,28	--	--	--	100,00	--	82,33	1,71	15,44	0,15
3	118,90°C (315 l/h (STP) H <sub>2</sub> )	46,36	46,36	7,28	--	1,05	--	100,00	--	80,53	3,05	15,72	0,20
4	Ni-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 99,80°C	50,00	50,00	--	--	--	--	100,00	--	64,79	4,68	28,43	0,49
5	120,30°C (346 l/h (STP) H <sub>2</sub> )	50,00	50,00	--	--	--	--	100,00	--	60,27	11,12	23,80	0,65
6	Ni-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 98,80°C	50,00	--	--	50,00	--	1,04	100,00	--	71,72	1,78	25,22	--
7	120,70°C (343 l/h (STP) H <sub>2</sub> )	50,00	--	--	50,00	--	1,04	100,00	--	65,85	3,98	27,72	--
8	Ni-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 150,00°C	--	--	--	100,00	--	--	--	30,02	--	3,63	92,66	--
9	165,00°C	--	--	--	100,00	--	--	--	52,5	--	6,24	79,98	--
10	175,70°C	--	--	--	100,00	--	--	--	71,0	--	7,23	59,16	--
11	184,80°C (75 l/h (STP) H <sub>2</sub> )	--	--	--	190,00	--	--	--	75,0	--	9,94	36,28	--

...

Tabelle I fortgeführt

12	Co-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 100,50°C	46,55	46,55	6,90	--	0,86	--	100,00	--	94,91	0,24	4,1	0,06
13	120,0°C (315 l/h (STP) H <sub>2</sub> )	46,55	46,55	6,90	--	1,11	--	100,00	--	95,54	0,23	3,94	0,02
14	Co-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 99,9°C	50,00	50,00	--	--	--	--	100,00	--	80,32	1,48	17,55	0,00
	(346 l/h (STP) H <sub>2</sub> )												
15	Co-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 100,0°C	50,00	--	--	50,00	--	1,04	100,00	--	90,57	0,10	9,06	--
16	118,2°C	50,00	--	--	50,00	--	1,04	100,00	--	89,49	0,21	9,90	--
17	131,6°C	50,00	--	--	50,00	--	1,04	100,00	--	85,70	0,38	13,44	--
18	140,0°C (343 l/h (STP) H <sub>2</sub> )	50,00	--	--	50,00	--	1,04	100,00	--	79,59	0,57	18,65	--
19	Co-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 150,3°C	--	--	--	100,00	--	--	--	10,7	--	--	94,71	--
20	175,0°C	--	--	--	100,00	--	--	--	48,8	--	1,09	87,81	--
21	166,0°C	--	--	--	100,00	--	--	--	28,1	--	0,58	94,14	--
22	185,0°C (75 l/h (STP) H <sub>2</sub> )	--	--	--	100,00	--	--	--	63,2	--	1,17	78,04	--

130039/0995



In den Beispielen 23-25 wurde das erfindungsgemäße Verfahren unter Atmosphärendruck und in chargenweisem Betrieb durchgeführt. In diesen Beispielen wurde ein Wasserstoffstrom (70-90 ml/min) durch in gerührtes Gemisch von 153 g DMAPA und 25 g feingemahlenem Katalysator geleitet. Das Gemisch wurde am Rückflußkühler erhitzt und in Abständen wurden Proben für die GC-Analyse entnommen. Die Rückflußtemperatur der Flüssigkeit stieg mit der Zeit an. Abgasproben der Versuche zeigten die Anwesenheit von Ammoniak, Dimethylamin und verschiedener unbekannter Verbindungen. Die Ergebnisse dieser Beispiele sind in Tabelle II zusammengefaßt.

130039/0995

Tabelle II

Bei- spiel	Temp. °C	Probe nach (h)	Katalysator	DMAPA	GC-Analyse (A%) DMPPDA	T <sub>4</sub> MTBPA	unbekannt	Gewinnung Gew. %
23	129-131 131-144 144-194,5	5 15,5 16,2	Ni-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	92 NB 5	1,3 NB 40	0,1 NB 5	--- NB 50	NA NB 15,1
24	131-135 135 138	6,5 23 30	Co-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	96,6 97,8 96,5	-- -- --	40,1 40,1 40,1	3,2 2,1 3,5	NA NA 77,5
25	131-134,5 134,5-150 150-182	7,5 <sup>a</sup> 23 <sup>a</sup> 25 <sup>a</sup>	Ni-Cu-Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	98,4 8,5 3,7	0,4 18,3 20,5	0,1 31,3 34,2	1,1 41,9 41,6	NA NA NB
NA = nicht anwendbar			NB = nicht bestimmt					

<sup>a</sup> Wasserstoff wurde dem System nur 1 h zugeführt, danach wurde Stickstoff eingeleitet.

...

3048832

~~-12-~~ -13-

Das erfindungsgemäße Verfahren liefert die Tetraalkylimino-bis-alkylamine in großer Reinheit, was sie für die Herstellung der Polyurethankatalysatoren der US-Patentschriften 4 101 466 und 4 143 071 besonders geeignet macht. Dieses Verfahren benötigt außerdem weniger Stufen als das in diesen Patenten beschriebene Verfahren zur Herstellung von Bis-aminen. Diese Bis-amine können auch als Korrosionsinhibitoren und Zwischenprodukte für funktionelle Monomere und Schmieröl-Dispergentien eingesetzt werden.

130039/0995

*Handwritten signature*